

А  
17246

На правах рукописи

ПЕЛЕГОВ Дмитрий Вячеславович

**ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ФРАКТАЛЬНОГО ФОРМАЛИЗМА  
ДЛЯ ОПИСАНИЯ КИНЕТИКИ ФАЗОВЫХ ПРЕВРАЩЕНИЙ  
В КОНЕЧНЫХ СИСТЕМАХ**

Специальность 01.04.07. – физика твердого тела

**АВТОРЕФЕРАТ**  
диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико–математических наук

Научная библиотека  
Уральского  
Государственного  
Университета

Екатеринбург – 2000

Работа выполнена в отделе оптоэлектроники и полупроводниковой техники НИИ физики и прикладной математики при Уральском ордена Трудового Красного Знамени государственном университете им. А.М. Горького.

Научный руководитель –

доктор физико-математических  
наук, профессор  
В.Я. Шур

Официальные оппоненты –

доктор физико-математических  
наук, профессор  
А.С. Москвин

доктор физико-математических  
наук, профессор  
М.П. Кащенко

Ведущее учреждение –

Уральский государственный  
технический университет

Защита состоится « 11 » мая 2000 г. в 15.00 часов на заседании диссертационного совета Д063.78.07 по защите докторских диссертаций в Уральском государственном университете им. А.М. Горького (620083, г. Екатеринбург, К-83, пр. Ленина 51, комн. 248).

С диссертационной работой можно ознакомиться в библиотеке Уральского государственного университета.

Автореферат разослан « 11 » апреля 2000 г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета,  
доктор физико-математических наук,  
профессор



Н.В. Баранов

## **ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ**

### **1. Актуальность темы исследования.**

В последнее время в связи с бурным ростом практического применения интегральных схем, содержащих сегнетоэлектрики, и широким использованием сегнетоэлектриков с размытым фазовым переходом (релаксоров) остро стоит проблема изучения кинетики фазовых превращений в сегнетоэлектрических пленках и керамике. Важной задачей является развитие неповреждающих способов исследования фазовых превращений в таких системах.

Одним из наиболее простых и эффективных методов контроля сверхбыстрой эволюции различных систем является малоугловое рассеяние. Этот метод позволяет регистрировать изменения морфологии и структуры с высоким временным разрешением.

Известно, что процесс фазового превращения, как правило, представляет собой эволюцию сложных самоподобных структур [1]. Для количественного описания таких структур обычно используют фрактальный формализм [1,2]. Многочисленные исследования показали, что из величины фрактальной размерности объекта можно извлечь информацию о способе его построения [1-6]. Следует отметить, что в широком круге задач величина фрактальной размерности может быть определена непосредственно из измерений малоуглового рассеяния.

Формально фрактальный формализм применим только для описания объектов с бесконечным диапазоном скэйлинга (самоподобным поведением в бесконечно широком диапазоне размеров). Между тем, большой практический интерес представляет проблема изучения фазовых превращений именно в конечных системах с ограниченным диапазоном скэйлинга: пленках и керамике.

В связи с этим изучение применимости фрактального формализма для описания кинетики фазовых превращений в конечных системах является актуальной физической задачей.

### **2. Цель и задачи работы.**

Целью данной работы является изучение с использованием методов компьютерного моделирования возможности использования фрактального формализма для описания кинетики фазового превращения и эволюции гетерофазной структуры в конечных системах (пленках и керамике).

Для достижения указанной цели решались следующие задачи:

- Провести компьютерное моделирование фазового превращения в пленках при зарождении новой фазы только на границе пленка-подложка. Обосновать использование фрактального формализма для исследования фазовых превращений в таких системах. Установить связь между параметрами кинетики фазовых превращений и изменением фрактальной размерности фазовой границы.
- Использовать полученные результаты для анализа изменения угловых зависимостей рассеянного света при фазовом превращении пирохлор-перовскит при отжиге тонких пленок цирконата-титаната свинца (PZT).
- Провести компьютерное моделирование эволюции гетерофазной структуры при фазовом превращении в системе с пространственно-необнородной критической температурой. Исследовать возможность использования фрактального формализма для описания эволюции формирующейся кластерной структуры при росте доли новой фазы в системе конечных размеров.
- Использовать полученные результаты для описания индуцированных полем фазовых превращений в прозрачной релаксорной керамике цирконата-титаната свинца, легированного лантаном (PLZT), в области размытого фазового перехода.
- Рассмотреть возможность определения фрактальной размерности профиля фазовой границы конечных размеров. Изучить влияние ограничения диапазона скэйлинга на величину фрактальных размерностей, определенных различными методами.
- С использованием полученных соотношений проанализировать шумы токов переключения в молибдате гадолия.

### 3. Научная новизна.

Впервые кинетика фазовых превращений в конечных системах (пленках) исследовалась в терминах изменения фрактальной размерности фазовой границы  $D$ . При этом характеристикой процесса являлась зависимость  $D$  от времени.

Показано, что при фазовом превращении с зарождением фазы на границе пленка-подложка введение эффективной фрактальной размерности позволяет связать изменение  $D$  с изменением доли поверхности пленки, занятой новой фазой.

Получена дополнительная информация о кинетике фазового превращения пирохлор-перовскит в пленках PZT при использовании фрактального формализма к описанию изменения морфологии.

Предложена модель изменения гетерофазной структуры в двух- и трехмерных конечных системах с размытым фазовым переходом, позволяющая описать эволюцию различных типов кластеров вблизи и вдали от порога протекания в терминах изменения фрактальной длины корреляции (fractal cutoff).

Предложенный метод апробирован для анализа результатов измерения упругого рассеяния света при индуцированных полем фазовых превращений в прозрачной релаксорной PLZT керамике.

Изучено влияние ограниченного диапазона скэйлинга на величину определяемой фрактальной размерности профилей. Проведен сравнительный анализ методов определения фрактальной размерности шумов при ограничении диапазона скэйлинга.

#### **4. Научная и практическая ценность, личный вклад.**

Определена зависимость от времени изменения величины фрактальной размерности фазовой границы на различных стадиях фазового превращения в пленке с зарождением новой фазы на границе пленка-подложка.

Разработанный способ учета влияния ограниченного диапазона скэйлинга на фрактальную размерность конечных профилей может быть использован для изучения временных рядов различной природы.

Предложенный анализ угловых зависимостей рассеянного света применим при исследовании кинетики различных быстропротекающих фазовых превращений в сильнонеравновесных системах.

Разработанный метод математической обработки результатов углового рассеяния света был использован для неразрушающего контроля фазового превращения пирохлор-перовскит при быстром отжиге тонких пленок PZT и индуцированных полем фазовых превращений в релаксорной PLZT керамике.

Метод универсален и позволяет решить широкий круг задач по оптимизации технологии создания тонких пленок.

Все основные результаты работы получены лично автором. Обсуждение направления исследований, формулирование задач и обсуждение результатов осуществлялись совместно с научным руководителем В.Я. Шуром. Соавторы публикаций С.А. Негашев, А.Л. Субботин, Е.А. Борисова, Е.Б. Бланкова и С. Тролиер-МакКинстри предоставили результаты экспериментов по отжигу пленок PZT, а Г.Г. Ломакин, В.П. Куминов, С.С. Белоглазов и С.В. Словиковский - по индуцированным полем фазовым превращениям в релаксорной PLZT керамике.

## **5. Научные положения и результаты, выносимые на защиту:**

1. Из зависимости от времени фрактальной размерности фазовой границы в пленке, при фазовом превращении с образованием зародышей на границе пленка-подложка, могут быть определены основные параметры процесса роста фазы: скорость сквозного прорастания новой фазы, время зарастания границы и постоянная времени процесса.

2. Эволюция кластерной структуры при зарождении фазы во всем объеме может быть описана в терминах зависимости от времени фрактальной длины корреляции.

3. Учет ограниченности диапазона скэйлинга позволяет более точно определять величину фрактальной размерности конечных профилей.

## **6. Апробация работы.**

Основные результаты работы докладывались на первом (1997, Москва, Россия) и втором (1999, Воронеж, Россия) Всероссийских семинарах «Нелинейные процессы и проблемы самоорганизации в современном материаловедении», на XV Всероссийской конференции по физике сегнетоэлектриков (1999, Ростов-на-Дону, Россия), на девяти международных конференциях: Materials Research Society (1995 - 1997, Fall Meeting, Boston, USA, 1996 и 1998, Spring Meeting, San Francisco, USA); 3rd European Conference on Applications of Polar Dielectrics, Bled, Slovenia, 1996; Ninth International Meeting on Ferroelectricity, Seoul, Korea 1997; International Symposium on Ferroic Domains and Mesoscopic Structures, State College, USA 1998 и 9th European Meeting on Ferroelectricity, Praha, Czech Republic 1999.

## **7. Публикации.**

По материалам диссертации опубликована 21 работа, в том числе 4 статьи. Список публикаций приведен в конце реферата.

## **8. Объем и структура работы.**

Диссертационная работа состоит из введения, четырех глав, заключения и списка литературы. Общий объем работы составляет 115 страниц, включая 50 рисунков, 3 таблицы и библиографию из 65 наименований.

## ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

**Во введении** обоснована актуальность темы диссертации, сформулированы цель и задачи работы, определены объекты исследования, перечислены положения, выносимые на защиту, показана научная новизна полученных результатов и их практическая ценность, приведены сведения об апробации результатов работы, публикациях, объеме и структуре работы.

**В первой главе** сделан краткий литературный обзор по теме диссертации. В начале главы изложены основные сведения о фрактальных объектах: краткая историческая справка, информация о первых применениях фрактального формализма для описания физических явлений. Обосновывается выбор темы. Представлена основная информация о математических идеях фрактальной геометрии. Вводятся понятия размерности Хаусдорфа-Безиковича, фрактальной размерности  $D$  и меры, дается определение фрактала.

Также в главе изложены основные математические принципы построения фрактальных объектов и описаны наиболее распространенные математические фракталы. Дана классификация, описание и методы построения основных видов фрактальных объектов: фрактальных линий (профилей)  $1 < D < 2$ ;  $2$  и фрактальных поверхностей  $2 < D < 3$ , а также массовых фракталов, представляющих собой объекты с самоподобной структурой.

Далее подробно описаны методы определения фрактальной размерности линий: Ричардсона, Минковского, Колмогорова, Корчака, Херста, Фурье, RMS, нормированного размаха ( $R/S$ ), метод анализа размерности. Методы обобщены для определения фрактальной размерности поверхностей. Рассмотрены модификации методов для анализа временных рядов.

Отмечено, что реальные методы определения  $D$  не всегда дают точное значение фрактальной размерности объекта, причем разные методы могут давать различные значения. Изложены экспериментальные методы определения фрактальной размерности как изменяющие структуру исследуемого объекта, так и неповреждающие. Подробно описан метод определения фрактальной размерности с использованием малоуглового рассеяния. Отмечено, что ограничение скэйлинга может затруднять определение фрактальной размерности. Введено понятие фрактальной длины корреляции – верхнего предела диапазона скэйлинга (fractal cutoff).

Отдельный раздел главы посвящен изложению основных представлений о рассеянии света на фрактальных объектах – кластерах и поверхностях. При упругом рассеянии света на кластерной структуре зависимость интенсивности рассеянного света  $I$  от волнового вектора  $q$  имеет вид:

$$I(q) \sim P(q) S(q) \quad (1)$$

где волновой вектор  $q = 4\pi/\lambda \sin(\phi/2)$ ,  $\lambda$  - длина волны,  $\phi$  - угол рассеяния.  $P(q)$  – форм-фактор (рассеяние индивидуальной частицей),  $S(q)$  - структурный фактор.

Для сферически симметричных частиц с постоянной плотностью и радиусом  $r_0$  выражение для  $P(q)$  называется законом Поро и имеет вид:

$$\begin{aligned} P(q) &\sim 1, & \text{при } qr_0 \ll 1 \\ P(q) &\sim q^{-4}, & \text{при } qr_0 \gg 1 \end{aligned}$$

В общем случае структурный фактор записывается как:

$$S(q) \sim \int_0^{\infty} g(r) [\sin(qr)/qr] r^2 dr \quad (2)$$

где  $g(r)$  - корреляционная функция.

Для фрактальных кластерных структур:

$$g(r) \sim r^{3-D} \exp(-r/\xi)$$

где  $D$  – фрактальная размерность,  $\xi$  – фрактальная длина корреляции.

$$I(q) \sim q^{-D} [1 + (q\xi)^{-2}]^{(1-D)/2} \sin[(D-1) \operatorname{atan}(q\xi)] \quad (3)$$

Для широкого диапазона скейлинга ( $q\xi \gg 1$ ):

$$I(q) \sim q^{-D} \quad (4)$$

В случае рассеяния света фрактальной поверхностью [4]:

$$I(q) \sim q^{-(6-D)} \quad (5)$$

Рассмотрены различные примеры экспериментального исследования реальных фрактальных объектов методом упругого рассеяния.

В конце главы сформулированы основные задачи диссертационной работы.

**Вторая глава** посвящена изучению кинетики фазовых превращений (кристаллизации или образования новой фазы) в системах с сильной анизотропией размеров (пластинах или пленках) – в терминах измене-



ния фрактальной размерности поверхности фазовой границы. Для определения соотношений между параметрами фазового превращения и величиной фрактальной размерности (или характером ее зависимости от времени) было проведено компьютерное моделирование.

Процесс полного фазового превращения рассматривался как рост новой фазы в пленке с размерами  $w \times w \times L$  ( $w = 257$ ). Толщина пленки  $L$  варьировалась. Зародыши новой фазы возникали только на нижней грани пленки (границе пленка-подложка) и росли изотропно в плоскости подложки со скоростью  $v$ . Как только некоторая точка нижней грани переходила в новую фазу, над ней начинал расти столб новой фазы со скоростью  $v_f$  [7]. Нетрудно понять, что в этой модели зародыши росли в виде прямых круговых конусов. Таким образом в процессе фазового превращения «над плоской равниной вырастали конические холмы», а маточной фазе соответствовали «равнинные» участки.

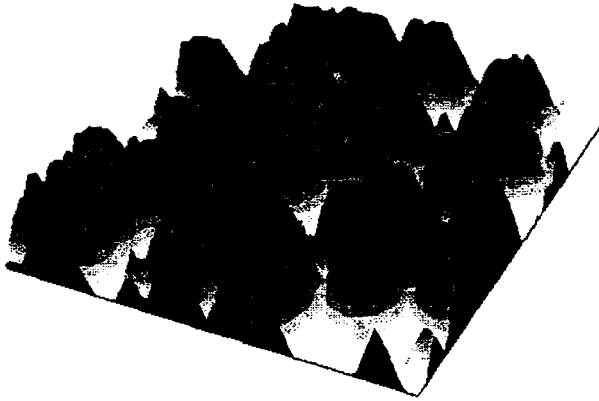


Рис. 1. Рельеф поверхности фазовой границы в тонкой пленке.

Начиная с момента сквозного прорастания  $t_z = L/v$ , области новой фазы достигали верхней грани и приобретали форму усеченных конусов (рис.1).

Использовались две модели [8,9]: 1)  $\alpha$ -модель с постоянной скоростью зародышеобразования ( $\alpha = \text{const}$  - плотность зародышей, образующихся в единицу времени) и 2)  $\beta$ -модель с образованием зародышей, только в начальный момент ( $\beta$  - плотность начальных зародышей).

В качестве параметра, характеризующего мгновенное состояние системы, использовалась фрактальная размерность поверхности фазовой границы  $D$ , определенная методами Минковского и RMS [3].

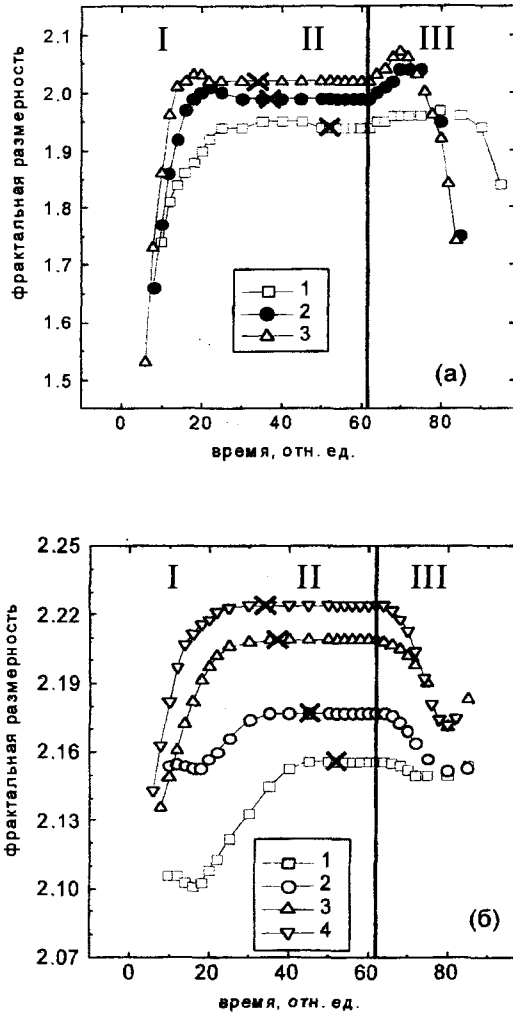


Рис. 2. Зависимость от времени фрактальной размерности фазовой границы, определенной методами: (а) Минковского, (б) RMS. Время сквозного прорастания  $t_z = 60$ ,  $\alpha \cdot 10^{-4}$ : (а) 1 – 0.8, 2 – 1.5, 3 – 3.8 и (б) 1 – 0.8, 2 – 1.5, 3 – 2.2, 4 – 3.8. Время зарастания нижней грани  $t_{\text{end}}$  отмечено крестами, а время сквозного прорастания  $t_z$  – сплошной линией.

Мгновенные значения  $D$  усреднялись для последовательности независимых реализаций. Полученные зависимости  $D(t)$  для  $\alpha$ -модели приведены на рис. 2.

Были отмечены следующие особенности: 1) фрактальная размерность изменяется на протяжении всего процесса полного фазового превращения, 2) величина и диапазон изменения  $D$  зависит от метода ее определения и 3) диапазон изменения  $D$  зависит от параметров процесса. Первая и вторая особенности означают, что из величины фрактальной размерности объекта не удастся определить кинетику его образования.

Анализ зависимости  $D(t)$  позволил выделить два характерных времени:  $t_{\text{end}}$  – время зарастания нижней грани и  $t_z$  – время сквозного прорастания. Соответственно, можно определить три стадии эволюции фазовой границы: 1) «зарастание нижней грани»,  $t < t_{\text{end}}$ , 2) движение стабильной фазовой границы,  $t_{\text{end}} < t < t_z$  и 3) «зарастание верхней грани»,  $t > t_z$ .

На стадии «зарастания нижней грани» наблюдается увеличение  $D$ . Отдельные зародыши новой фазы разрастаются и сливаясь образуют поверхность сложной формы. Среди «гор» (областей новой фазы) существуют «равнины» (участки нижней грани занятые маточной фазой). Увеличение доли новой фазы приводит к тому, площадь «горных» участков увеличивается, а «равнинных» уменьшается. Введя понятие «эффективной» фрактальной размерности  $D_{\text{eff}}$ , изменение можно описать в терминах изменения доли нижней грани, занятой маточной фазой  $p$ :

$$D_{\text{eff}}(t) = D_1 p(t) + D_2 [1 - p(t)] = D_2 - \Delta D p(t) \quad (6)$$

где  $D_2$  – фрактальная размерность стабильной фазовой границы, сформированная к моменту времени  $t_z$ ,  $D_1$  – размерность поверхности нижней грани,  $\Delta D = D_2 - D_1$ ,  $p(t)$  – изменение доли нижней грани, занятой маточной фазой.

Согласно теории Колмогорова – Авраами [8,9]:

$$p(t) = \exp \left\{ - \int_0^t \alpha(\zeta) V[R(\zeta, t)] d\zeta \right\} \quad (7)$$

где  $\alpha$  вероятность зародышеобразования,  $\zeta$  – время появления зародыша,  $V(R) = c R^n$  объем изолированного зародыша,  $c$  – константа формы,  $n$  – размерность задачи,  $R(\zeta, t)$  – радиус индивидуального зародыша. Для постоянных скоростей бокового роста и зародышеобразования  $R(\zeta, t) = v(t - \zeta)$ , где  $v$  – скорость бокового роста. Тогда для двумерного роста:

для  $\alpha$ -модели

$$p(t) = \exp(-c \alpha v^2 t^{3/3}) = \exp[-(t/t_{0\alpha})^3] \quad (8)$$

для  $\beta$ -модели

$$p(t) = \exp(-c \beta v^2 t^2) = \exp[-(t/t_{0\beta})^2] \quad (9)$$

Аппроксимируя  $D(t)$  на стадии зарастания нижней грани формулами (6) и (8) были определены  $t_0$ , для разных  $\alpha$ , (рис. 3).

Важно отметить, что полученные значения  $t_0$  близки к параметрам  $t_{0\alpha} = (c \alpha v^2/3)^{-1/3}$ , использованным при моделировании (рис. 3 на вставке).

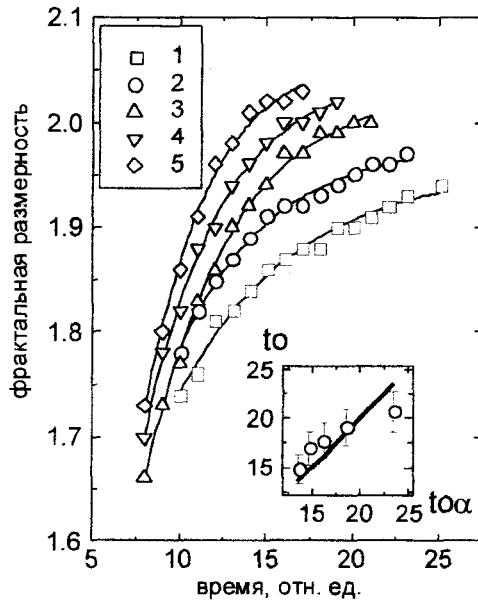


Рис. 3. Увеличение  $D$  на стадии зарастания нижней грани. Результаты компьютерного моделирования аппроксимированы зависимостями (6) и (8).  $\alpha \cdot 10^{-4}$ : 1 – 0.8, 2 – 1.5, 3 – 2.2, 4 – 3.0, 5 – 3.8.  $D$  определена методом Минковского. На вставке – зависимость  $t_0$ , определенной аппроксимацией  $D(t)$  формулами (6) и (8), от  $t_{0\alpha}$

Стадии движения стабильной фазовой границы соответствует постоянное значение  $D$  (рис.2) в диапазоне времен от  $t_{\text{end}}$  до  $t_z$ . В мо-

мент времени  $t_{\text{end}}$  рельеф поверхности фазовой границы перестает изменяться и увеличение доли новой фазы приводит только к параллельному сдвигу фазовой границы.

Было показано, что величина фрактальной размерности стабильной фазовой границы  $D_2$  зависит от плотности зародышей новой фазы  $\beta$ , образовавшихся на нижней грани в начальный момент времени и от плотности скорости зародышеобразования  $\alpha$ . Для  $\alpha \ll 1$  и  $\beta \ll 1$  (рис. 4):

$$D_2(\alpha) = D_0 + a \alpha^{1/3} \quad (10)$$

$$D_2(\beta) = D_0 + b \beta^{1/2} \quad (11)$$

где  $D_0 \approx 2$ , и зависит от метода определения  $D$ .

Показано, что такая зависимость может быть получена, если предположить, что изменение  $D_2$  пропорционально полному количеству образующихся при фазовом превращении зародышей («вершин»).

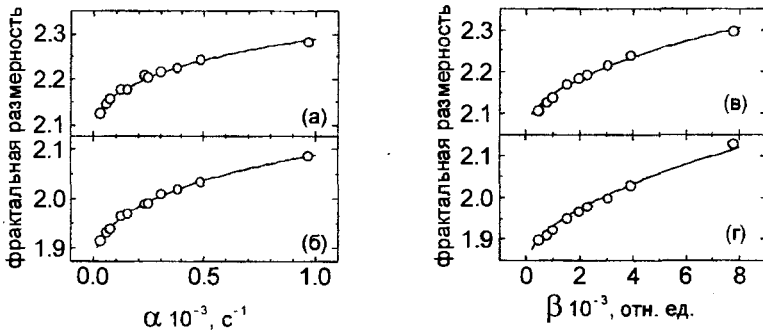


Рис. 4. Зависимость  $D_2$  от: (а), (б)  $\alpha$  и (в), (г)  $\beta$ . Результаты компьютерного моделирования аппроксимированы зависимостями (10) и (11). Фрактальная размерность определялась методами: (а), (в) RMS и (б), (г) Минковского.

На стадии «зарастания верхней грани» ( $t > t_z$ ) наблюдается уменьшение  $D$ . В момент времени  $t = t_z$  наиболее высокие «вершины» стабильной фазовой границы достигали поверхности верхней грани. Для этих «вершин» вертикальный рост новой фазы прекращался, а боковой рост приводил к тому, что они приобретали форму усеченных конусов. На этой стадии изменение  $D_{\text{eff}}$  описывается зависимостью:

$$D_{\text{eff}}(t) = D'_1 [1 - p(t)] + D_2 p(t) = D_2 - \Delta D [1 - p(t)] \quad (12)$$

В общем случае  $D_1$  в (6) (размерность поверхности нижней грани) и  $D'_1$  в (12) (размерность поверхности верхней грани) могут различаться.

Следует отметить, что все три стадии должны наблюдаться только в «толстых» пленках, в которых время сквозного прораствания  $t_z$  меньше времени полного зарастания нижней грани  $t_{end}$ . В тонких пленках ( $t_z < t_{end}$ ) стабильная фазовая граница не формируется.

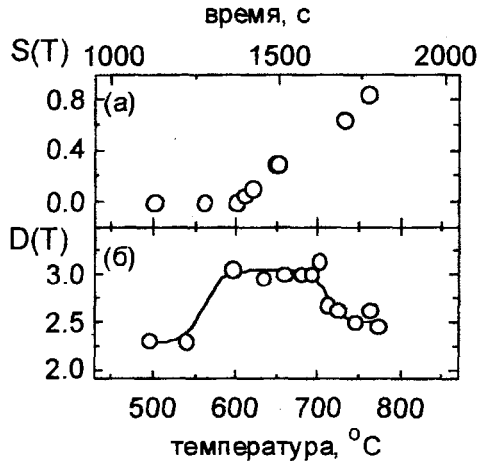


Рис. 5. Температурные зависимости (а) доли фазы перовскита  $S(T)$  и (б) фрактальной размерности  $D(T)$  при отжиге с постоянной скоростью нагрева  $dT/dt = 0.4^\circ\text{C}/\text{с}$ . Экспериментальные точки аппроксимированы зависимостями (6) и (12).

В конце главы полученные результаты были использованы для анализа экспериментальных данных по упругому рассеянию света, отраженного от фазовой границы при отжиге пленок.

Исследовалась кинетика фазового превращения пироклор-перовскит в пленках цирконата-титаната свинца  $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$  (PZT). Показано экспериментально, что процесс роста фазы перовскита происходит с образованием зародышей только на границе пленка-подложка, что соответствует рассмотренной модели [10]. Различие коэффициентов преломления фаз пироклора и перовскита [11] позволяло контролировать распределение фаз в частично отожженных пленках методом упругого рассеяния света. Угловые зависимости ин-

тенсивности рассеянного света аппроксимировались формулой (5) и определялась величина  $D$ .

Изменение фрактальной размерности фазовой границы и доли фазы перовскита при отжиге с постоянной скоростью нагрева приведены на рис. 5. Сравнение результатов компьютерного моделирования и экспериментальных данных демонстрирует качественное совпадение характера изменения  $D$  и позволяет определить  $t_0$ ,  $t_{end}$  и  $t_z$ .

В третьей главе моделировалось фазовое превращение в конечных системах с равновероятным зарождением новой фазы во всем объеме. Для каждого значения доли новой фазы  $p$  области новой фазы распределялись по всему объему равновероятно. Смежные области новой фазы образовывали кластеры.

Была проведена серия компьютерных экспериментов по моделированию фазового перехода на квадратной (размеры до  $450 \times 450$ ) и кубической (размеры  $20 \times 20 \times 20$ ) решетках с различной долей  $p$ . Для каждого значения  $p$  определялись функции распределения кластеров новой фазы по массам  $N(m)$ . Дополнительно определялись такие параметры кластерной структуры как плотность протекающего кластера, средний размер внутреннего и граничного непротекающего кластера и радиус корреляции наибольшего непротекающего кластера. Для каждого значения  $p$  проводилось усреднение по серии из 100 независимых реализаций в двумерном случае и по 1000 в трехмерном.

Для учета граничных условий кластеры новой фазы делились на «граничные» и «внутренние». Типичные функции распределения граничных и внутренних кластеров по размерам приведены на рис. 6.

Функции распределения как граничных, так и внутренних кластеров описывались зависимостью:

$$N(m) \sim m^{-b} \exp(-m/\xi) \quad (13)$$

где  $m$  – масса кластера,  $b$  – показатель скэйлинга,  $\xi$  – фрактальная длина корреляции (fractal cutoff).

При обработке результатов компьютерного моделирования зависимостью (9) величина  $b$  фиксировалась равной 1.89 – наклон  $b$  на пороге протекания (как было показано [2] показатель  $b$  на пороге протекания совпадает с фрактальной размерностью перколяционного кластера). Максимальный диапазон скэйлинга функции распределения (максимальная  $\xi$ ) наблюдался при  $p \approx p_c = 0.593$ , что соответствует порогу протекания для задачи узлов на квадратной решетке.

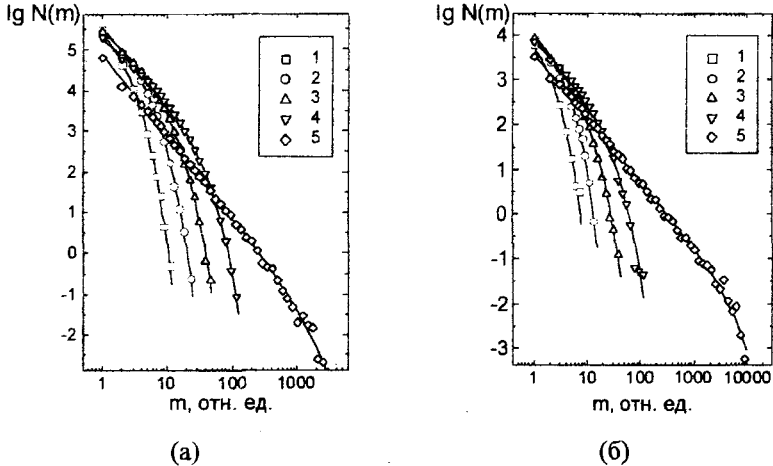


Рис. 6. Функции распределения (а) внутренних и (б) граничных кластеров по массам (размерам) для малых  $p$ : 1 – 0.1, 2 – 0.2, 3 – 0.3, 4 – 0.4, 5 – 0.593. Результаты компьютерного эксперимента аппроксимированы зависимостью (13).

Как видно на рис. 6 амплитуда функции распределения внутренних кластеров больше амплитуды функции распределения граничных кластеров на порядок. При этом диапазон скейлинга для граничных кластеров на пороге протекания на порядок превышает диапазон скейлинга внутренних кластеров.

Было показано, что фрактальная длина корреляции как внутренних, так и внешних кластеров при приближении к порогу протекания демонстрирует типичное критическое поведение (рис. 7.а):

$$\xi(p) \sim |p - p_c|^{-k} \quad (14)$$

Изучалось влияние конечности размеров системы на средние размеры внутренних и граничных кластеров. Сравнивались функции распределения  $N(m)$  для разных значений размеров системы  $L$ . Размеры  $L$  изменялись от 50 до 450. Зависимость фрактальной длины корреляции от размеров системы на пороге протекания и вдали от него приведены на рис. 8.



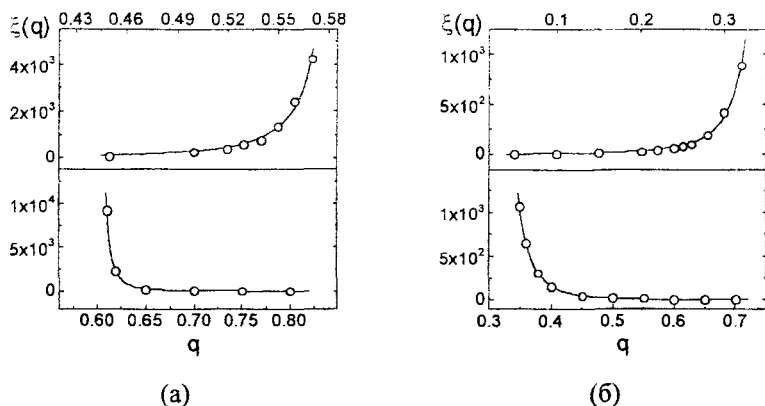


Рис. 7. Критическая зависимость фрактальной длины корреляции от доли новой фазы при фазовом превращении на (а) двумерной и (б) трехмерной решетке. Результаты компьютерного эксперимента аппроксимированы зависимостью (14).

Выше и ниже порога протекания фрактальная длина корреляции не зависит от размеров системы, а на пороге протекания  $\xi$  растет с увеличением  $L$  по степенному закону. Таким образом, было показано, что экспоненциальная часть зависимости (6) (ограниченность диапазона скэйлинга), обусловлена не конечностью системы, а особенностью данной модели зарождения фазы.

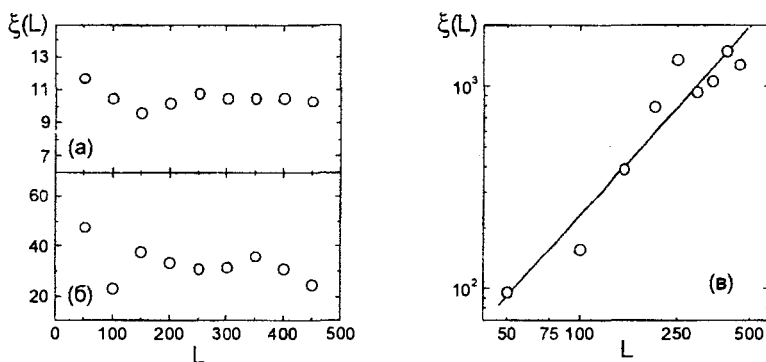


Рис. 8. Зависимость фрактальной длины корреляции от размеров системы (а) ниже и (б) выше порога протекания, (в) на пороге протекания.

Кроме того, было показано, что вдали от порога протекания средние размеры граничных и внутренних кластеров не зависят от размеров системы.

Моделирование процесса фазового превращения в трехмерной решетке также показало критическое поведение  $\xi(p)$  (рис. 7.б), описываемое зависимостью (10).

Поскольку при рассеянии света полидисперсной структурой вместо  $g(r)$  используется функция распределения кластеров по массам, то угловая зависимость интенсивности света, рассеянного моделируемой кластерной структурой, имеет вид (3).

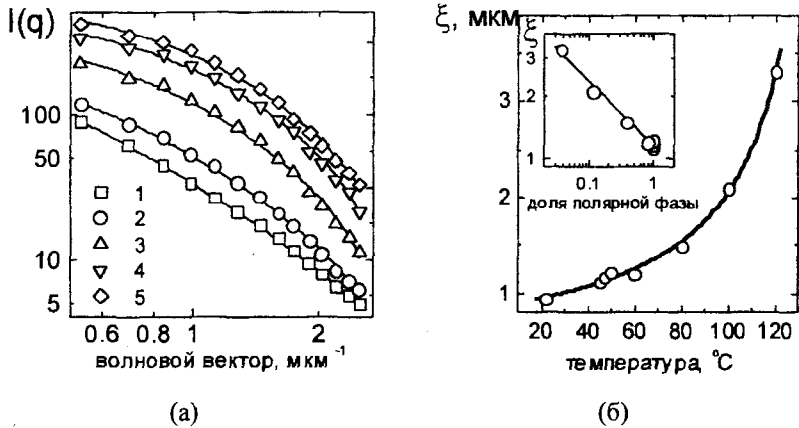


Рис.9 (а) Угловая зависимость интенсивности рассеянного света для различных температур ( $T$ ,  $^{\circ}\text{C}$ : 1 – 120, 2 – 100, 3 – 80, 4 – 60, 5 – 47). Экспериментальные данные аппроксимированы зависимостью (3). (б) Критическое температурное поведение фрактальной длины корреляции. Толщина образца 90  $\text{мкм}$ ,  $E = 10 \text{ кВ/см}$ ,  $T_c = 149^{\circ}\text{C}$ ,  $\xi_0 = 0.28 \text{ мкм}$ . На вставке зависимость от доли полярной фазы. Экспериментальные точки аппроксимированы (14).

Результаты моделирования, полученные в третьей главе, были использованы для анализа экспериментальных данных по малоугловому рассеянию монохроматического света прозрачной крупнозернистой (размер зерен от 4 до 7  $\text{мкм}$ ) релаксорной PLZT керамикой при воздействии серии однополярных прямоугольных импульсов поля. Очевидно, что в релаксорной керамике индуцированная полем эволюция гетерофазной структуры, состоящей из нанообластей, не может быть исследована путем непосредственной оптической визуализации. Вместе с тем, в электрическом поле резко возрастает интенсивность рассеянно-

го света, которая определяется пространственным распределением локальных значений спонтанной поляризации, что позволяет получать информацию об эволюции гетерофазного состояния из *in situ* измерений. Следует отметить, что гетерофазная структура представляет собой сложный объект с широким диапазоном скейлинга.

Угловые зависимости интенсивности рассеянного света аппроксимировались (3). Предполагалось, что  $D$  оставалась постоянной при изменении температуры и воздействии полевых импульсов. Изменение формы угловой зависимости было отнесено только за счет уменьшения диапазона скейлинга. Единственным параметром аппроксимации являлась фрактальная длина корреляции  $\xi$ . Видно, что температурная зависимость  $\xi$  в поле демонстрирует критическое поведение (рис. 9.6).

Наблюдающееся уменьшение  $\xi$  при охлаждении можно отнести за счет увеличения доли полярной фазы по аналогии с зависимостью  $\xi$  от концентрации, полученной в классических экспериментах по рассеянию нейтронов на аэрогелях кремния [6]. Зависимость  $\xi$  от экспериментально определенной доли полярной фазы  $p$  (рис. 9.6 на вставке) аппроксимирована соотношением (14).

Если предположить, что при температуре, соответствующей верхней границе релаксорного поведения, уже сформирован перколяционный кластер полярной фазы, то уменьшение  $\xi$  при охлаждении можно связать с уменьшением среднего размера его «пор».

**В четвертой главе** исследовалось влияние ограниченного диапазона скейлинга на величину определяемой фрактальной размерности  $D$  профиля фазовой границы. Рассматривались фрактальные профили с известной величиной фрактальной размерности  $D_{true}$ , полученные методами Фурье, фрактального броуновского движения и «смещения средней точки» [3].

Для определения  $D$  профиля использовались методы RMS, Фурье и Корчака [3]. Исследовалось влияние на величину  $D$  ограниченности скейлинга как по  $X$  направлению (конечная длина профиля), так и  $Y$ -направлению (конечная точность определения амплитуды или «ошибка квантования»).

Было установлено, что наличие ошибки квантования ( $\Delta A/A=0.1$ , где  $A$  – амплитуда, а  $\Delta A$  – точность определения амплитуды профиля), не оказывает существенного влияния на величину  $D$ .

Для учета влияния конечной длины профиля на величину фрактальной размерности,  $D$  определялась у профилей длиной от 1024 до 16 точек. Было показано, что метод Корчака [3] позволяет наиболее корректно учитывать ограниченность диапазона скейлинга.

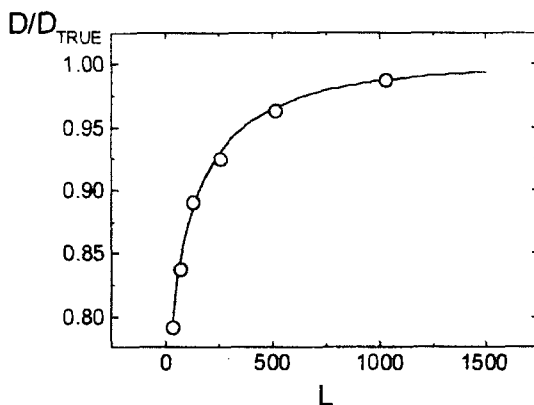


Рис. 10. Зависимость точности определения фрактальной размерности от длины профиля. Фрактальная размерность определялась методом Корчака [3]. Результаты моделирования аппроксимированы (15).

Точность определения величины  $D$  (отношение  $D/D_{\text{true}}$ ) для профилей различной длины приведена на рис. 10. Было показано, что изменение  $D/D_{\text{true}}$  при увеличении  $L$  описывается формулой:

$$D/D_{\text{true}} = 1 - A \exp[-(L/\lambda)^{1/2}] \quad (15)$$

Было также отмечено, что предложенные способы учета ограниченного диапазона скэйлинга для профиля фазовой границы можно использовать для анализа временных рядов. Описанный подход был применен для анализа шумов тока переключения при движении плоской доменной стенки в молибдате гадолиния.

## ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ РАБОТЫ

1. На основании проведенного моделирования роста фазы в пленке с образованием зародышей на границе пленка-подложка установлено, что зависимость фрактальной размерности фазовой границы  $D$  от времени позволяет исследовать кинетику процесса и выделить основные стадии эволюции фазовой границы. Анализ зависимости  $D(t)$  позволяет определить постоянную времени процесса и время зарастания границы пленка-подложка, а также скорость прорастания новой фазы.

2. Использование разработанного подхода позволило из мгновенных угловых зависимостей интенсивности рассеянного света определить параметры фазового превращения пироклорперовскит при быстром отжиге тонких пленок цирконата-титаната свинца.
3. На основании проведенного компьютерного моделирования было показано, что эволюция кластерной структуры при зарождении фазы во всем объеме может быть описана с использованием понятия о фрактальной длине корреляции.
4. С использованием предложенной методики проведено исследование индуцированных полем фазовых превращений в прозрачной релаксорной PLZT керамике. Показано, что использование фрактального формализма позволяет определять сценарии эволюции гетерофазного состояния в релаксорах при изменении температуры и воздействии электрического поля.
5. Исследовано влияние ограниченности диапазона скэйлинга на величину фрактальной размерности профиля.
6. Разработанный подход с применением фрактального формализма для изучения процессов зарождения и роста новой фазы может быть использован как метод неповреждающего контроля кинетики быстропротекающих фазовых превращений.

## ЛИТЕРАТУРА

1. B. Mandelbrot «The Fractal Geometry of Nature», San Francisco, Freeman, 1983.
2. Е. Федер «Фракталы», Изд.Мир, Москва, 1991.
3. J.C. Russ «Fractal Surfaces», Plenum Press, NewYork, 1994.
4. H.D. Bale and P.W. Schmidt, Phys.Rev.Lett., 1984, 53, pp. 596-599.
5. S.K. Sinha, Physica D., 1989. V. 38. P. 310.
6. E. Courtens, R. Vacher, E. Stoll, Physica D, 1989, v. 38, p.41.
7. В.З. Бельный, «Геометрико - вероятностные модели зародышеобразования», Изд. Наука, Москва, 1980.
8. Н.А. Колмогоров, Изв. АН СССР, Сер. Мат., 1937, 3, с. 355.
9. M. Avrami, J.Chem.Phys., 1939, v.73, pp. 1103-1112.
10. E.M. Griswold, L. Weaver, M. Sayer, I.D. Cadler, J.Mater.Res. 1995, v. 10, pp. 3149-3159.
11. И.П. Пронин, Н.В. Зайцева, Е.Ю. Каптелов, В.П. Афанасьев, Изв. РАН, сер. физ., 1997, 61, с. 379.

## СПИСОК ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

1. В. Я. Шур, Г.Г. Ломакин, В.П. Куминов, Д.В. Пелегов, С. С. Белоглазов, С. В. Словиковский, И.Л. Соркин, Кинетика фрактальных кластеров при фазовых превращениях в релаксорной PLZT керамике, ФТТ, 1999, Т.41, N.3, С. 505-509.
2. В.Я. Шур, С.А. Негашев, А.Л. Субботин, Д.В. Пелегов, Е.А. Борисова, Е.Б. Бланкова, С. Тролиер-МакКинстри, Эволюция фрактальной поверхности аморфных пленок цирконата-титаната свинца при кристаллизации, ФТТ, 1999, Т.41, N.2, с. 306-309.
3. В.Я. Шур, Г.Г. Ломакин, С.С. Белоглазов, Д.В. Пелегов, А.Э. Круминьш, А.Р. Штернберг, Фрактальные кластеры в ЦТСЛ керамике: эволюция в электрическом поле, Вестник ВГТУ. Сер. Материаловедение, 1999, вып. 1.5., с.48-52.
4. V.Ya. Shur, E.B. Blankova, A.L. Subbotin, E.A. Borisova, D.V. Pelegov, S. Hoffmann, D. Boltz, R. Gerhardt, and R. Waser, Influence of Crystallisation Kinetics on Texture of Sol-Gel PZT and BST Thin Films, J. Eur. Ceram. Soc., 1999, V.19, N.6-7, pp.1391-1395.
5. V.Ya. Shur, E.L. Rumyantsev, V.V. Volegov, D.V. Pelegov, E.A. Borisova, and S.A. Zykov, Evolution of the Fractal Surface of Amorphous Films during Crystallization, Abstracts of MRS FM'95, Boston, MA, November 27 - December 1, 1995, p.403.
6. V.Ya. Shur, S.A. Negashev, A.L. Subbotin, E.A. Borisova, S.A. Zykov, D.V. Pelegov, and S. Trolier-McKinstry, In Situ Investigation of Crystallization Kinetics in PZT Films by Light Scattering, Abstracts of MRS SM'96, San Francisco, CA, April 8-12, 1996, p.351.
7. V.Ya. Shur, S.A. Negashev, A.L. Subbotin, E.A. Borisova, D.A. Pelegov, and S. Trolier-McKinstry, In Situ Investigation of Crystallization Kinetics in Sol-Gel PZT Films, 3rd European Conference on Applications of Polar Dielectrics, Bled, Slovenia, August 26-29, 1996.
8. V.Ya. Shur, S.A. Negashev, A.L. Subbotin, E.A. Borisova, and D.V. Pelegov, In Situ Characterization of Thin Film Morphology by Elastic Light Scattering, Abstracts of MRS FM'96, Boston, MA, December 2-6, 1996, p.121.
9. В.Я. Шур, Д.В. Пелегов, С.А. Негашев, А.Л. Субботин, Е.А. Борисова, Эволюция фрактальной поверхности аморфных пленок в процессе кристаллизации, Тезисы докладов Первого Всероссийского семинара «Нелинейные процессы и проблемы самоорганизации в современном материаловедении», 15-17 апреля 1997, Москва, С.79.

10. В.Я. Шур, Г.Г. Ломакин, В.П. Куминов, Д.В. Пелегов, С.С. Белоглазов и С.В. Словицкий, Кинетика фрактальных кластеров при фазовых превращениях в релаксорной PLZT керамике, Тезисы докладов Первого Всероссийского семинара «Нелинейные процессы и проблемы самоорганизации в современном материаловедении», 15-17 апреля 1997, Москва, С.80.
11. V.Ya. Shur, E.B. Blankova, S.A. Negashev, A.L. Subbotin, E.A. Borisova, D.V. Pelegov, and S. Troler-McKinstry, Influence of Crystallization Kinetics on Texture and Switching Characteristics of the Sol-Gel PZT Thin Films, Abstract Book of the Ninth International Meeting on Ferroelectricity, Seoul, Korea, August 24-29, 1997, p.249.
12. V.Ya. Shur, A.L. Subbotin, E.A. Borisova, D.V. Pelegov, I.L. Sorkin, R.K. Ivanov and S. Troler-McKinstry, Evolution of Surface Morphology of Sol-Gel Films During Crystallization, Abstracts of the MRS FM'97, Boston, MA, December 1-5, 1997, p.15.
13. V.Ya. Shur, E.L. Rumyantsev, E.V. Nikolaeva, E.I. Shishkin, I.L. Sorkin, D.V. Pelegov, and R.K. Ivanov, Appearance and Development of the Fractal Domain Structure in Ferroelectrics: Experiment and Computer Simulation, Abstracts of International Symposium on Ferroic Domains and Mesoscopic Structures, State College, PA, April 6-10, 1998, p.101.
14. V.Ya. Shur, S.D. Makarov, D.V. Pelegov, I.L. Sorkin, and R.K. Ivanov, Morphological Evolution of Sol-Gel Films During Crystallization, Abstracts of MRS SM'98, San Francisco, CA, April 12-17, 1998.
15. В.Я. Шур, Г.Г. Ломакин, С.С. Белоглазов, Д.В. Пелегов, А. Sternberg, A. Krumins, Эволюция фрактальных кластеров в релаксорной ЦТСЛ керамике, Тезисы Второго Всероссийского семинара «Нелинейные процессы и проблемы самоорганизации в современном материаловедении», Воронеж, 3-5 февраля 1999, с. 17-19.
16. В.Я. Шур, Е.Б. Бланкова, А.Л. Субботин, Е.А. Борисова, Д.В. Пелегов, S. Hoffmann, D. Bolten, R. Gerhardt, R. Waser, Эволюция морфологии ЦТС пленок при быстром термическом отжиге, Тезисы Второго Всероссийского семинара «Нелинейные процессы и проблемы самоорганизации в современном материаловедении», Воронеж, 3-5 февраля 1999, с. 72-73.
17. В.Я. Шур, В.Л. Кожевников, Д.В. Пелегов, Е.В. Николаева, Е.И. Шишкин, Фрактальная природа скачков Баркгаузена в сегнетоэлектриках, Тезисы Второго Всероссийского семинара «Нелинейные процессы и проблемы самоорганизации в современном материаловедении», Воронеж, 3-5 февраля 1999, с. 74-75.

18. V. Ya. Shur, E. L. Rumyantsev, D. V. Pelegov, V. L. Kozhevnikov, E. V. Nikolaeva, and E. I. Shishkin, *Fractal Nature of Barkhausen Noise in Ferroelectrics*, Abstracts of the 9th European Meeting on Ferroelectricity, Praha, Czech Republic, 12-16 July, 1999, p. 189.
19. В.Я. Шур, Е.Л. Румянцев, С.Д. Макаров, Д.В. Пелегов, В.Л. Кожевников, Е.В. Николаева, Е.И. Шишкин, Анализ формы тока переключения как метод детального исследования кинетики доменов, Тезисы XV Всероссийской конференции по физике сегнетоэлектриков, Ростов-на-Дону, г. Азов, сентябрь 14-18, 1999, с. 70.
20. В.Я. Шур, В.Л. Кожевников, Д.В. Пелегов, Е.В. Николаева, Е.И. Шишкин, Фрактальная природа скачков Баркгаузена в сегнетоэлектриках, Тезисы XV Всероссийской конференции по физике сегнетоэлектриков, Ростов-на-Дону, г. Азов, сентябрь 14-18, 1999, с. 70.
21. В.Я. Шур, Е.Б. Бланкова, А.Л. Субботин, Е.А. Борисова, Д.В. Пелегов, А.В. Баранников, D. Bolten, R. Gerhardt, R. Waser, Кинетика фазового превращения в пленке PZT при быстром термическом отжиге, Тезисы XV Всероссийской конференции по физике сегнетоэлектриков, Ростов-на-Дону, г. Азов, сентябрь 14-18, 1999, с. 276.

Подписано в печ. 07.04.2000 г. Формат 60×84 1/16.

Бумага офсетная. Объем 1,5 п.л. Тираж 100. Зак. № 206.

Екатеринбург, К-83, пр. Ленина, 51. Типолаборатория УрГУ.